

学校编码: 10384

分类号\_\_\_\_密

级\_\_\_\_\_

学 号: 20620071150887

UDC\_\_\_\_\_

气  
液  
界  
面  
湍  
动  
现  
象  
研  
究

江  
桂  
仙

指  
导  
教  
师

沙  
勇

副  
教  
授

厦  
门  
大  
学

厦 门 大 学

硕 士 学 位 论 文

气液界面湍动现象研究

Study on the Gas-Liquid Interfacial  
Turbulence Phenomena

江桂仙

指导教师姓名: 沙 勇 副教授

专 业 名 称: 化 学 工 程

论文提交日期: 2010 年 5 月

论文答辩时间: 2010 年 6 月

学位授予日期: 2010 年 月

答辩委员会主席: \_

评 阅 人: \_

2010 年 5 月

# 厦门大学学位论文原创性声明

本人呈交的学位论文是本人在导师指导下，独立完成的研究成果。本人在论文写作中参考其他个人或集体已经发表的研究成果，均在文中以适当方式明确表明，并符合法律规范和《厦门大学研究生学术活动规范（试行）》。

另外，该学位论文为（ ）课题（组）的研究成果，获得（ ）课题（组）经费或实验室的资助，在（ ）实验室完成。（请在以上括号内填写课题或课题负责人或实验室名称，未有此项声明内容的，可以不作特别声明。）

声明人（签名）：

年 月 日

# 厦门大学学位论文著作权使用声明

本人同意厦门大学根据《中华人民共和国学位条例暂行实施办法》等规定保留和使用此学位论文，并向主管部门或其指定机构送交学位论文（包括纸质版和电子版），允许学位论文进入厦门大学图书馆及其数据库被查阅、借阅。本人同意厦门大学将学位论文加入全国博士、硕士学位论文共建单位数据库进行检索，将学位论文的标题和摘要汇编出版，采用影印、缩印或者其它方式合理复制学位论文。

本学位论文属于：

（        ） 1. 经厦门大学保密委员会审查核定的保密学位论文，于        年        月        日解密，解密后适用上述授权。

（        ） 2. 不保密，适用上述授权。

（请在以上相应括号内打“√”或填上相应内容。保密学位论文应是已经厦门大学保密委员会审定过的学位论文，未经厦门大学保密委员会审定的学位论文均为公开学位论文。此声明栏不填写的，默认为公开学位论文，均适用上述授权。）

声明人：

年        月        日

国家自然科学基金资助项目，项目号：20606027

Supported by the National Natural Science Foundation of China,

No. 20606027

## 摘要

在传质过程中,由于物质的传递使界面处物质的物理化学性质发生变化,在界面处可能会引起流体宏观流动,这种现象即为界面湍动现象。引起界面湍动现象的原因主要可归结为表面张力梯度引起的 Marangoni 效应和密度梯度引起的 Rayleigh 效应,粘度等其它因素则会影响界面对流作用的强弱。界面现象的产生,不但会促进液体的表面更新,而且还会增强溶质对液相主体的渗透,对传质有着极大的促进作用,研究界面湍动现象对促进界面传质机理的理解具有非常重要的意义。

观察界面湍动现象的方法一般有示踪法、粒子成像测速法(PIV)、激光干涉法、纹影法和投影法等,本文通过采用激光投影法对界面现象进行垂直方向的观察,利用  $N_2$  吹扫气液界面使气液界面上的有机溶剂挥发,以及在液体界面处添加表面添加剂两种途径来引发界面对流现象,获取了直观的界面湍动视觉图像,同时利用表面添加剂会增强传质的特性,采用水吸收  $CO_2$ ,在水界面上添加乙醇,考察了传质过程中 Marangoni 效应对水吸收  $CO_2$  的增强作用。在实验的基础上,应用数值模拟进行理论分析,获取了人为诱导的 Marangoni 对流的详细信息。

界面湍动现象主要有滚筒状、多边形、蜂窝状等对流结构,通过选择乙醚-正庚烷、丙酮-异丁醇、乙醇-水、异丙醇-水、丙酮-水、乙醚-甲苯和丙酮-正庚烷等七种体系,利用激光投影法分别从单独的 Marangoni 对流、Rayleigh 对流以及这两种对流的综合作用等三个角度来观察界面湍动现象,观察到的界面对流结构主要为垂直方向上的羽状对流、胞状对流以及涡流等不同的界面对流结构;采用丙酸、乙醇、乙酸、异丙醇和丙酮作为表面添加剂,在液体表面上添加表面添加剂后,观察了液相界面或主体中产生的一系列的流体流动现象。同时,通过在水界面添加乙醇,考察了 Marangoni 对流对水吸收  $CO_2$  的增强作用。

**关键词:** 界面现象 界面湍动 传质 数值模拟

## Abstract

During the process of gas-liquid mass transfer, the interface turbulence phenomena could occur near the interface if the density and surface tension of the fluid near the interface change due to the mass transfer. With respect to different mechanism, the Marangoni convection is caused by the surface tension gradient and the Rayleigh convection is caused by the density gradient. The other chemical and physical properties, especially the viscosity, also contribute to the interfacial turbulence. The occurrence of interface turbulence phenomena can boost the renewal of the liquid surface, improve penetration of the solute into the bulk of the liquid and accelerate the process of mass transfer. It is worthy of taking further investigation on the interface turbulence phenomena.

The observation of the interfacial turbulence phenomena is mainly by means of the tracer method, particle image velocimetry method (PIV), laser interferometry method, schlieren method and shadowgraph method. With the help of the laser shadowgraph optical method, the interfacial turbulence vertical to the gas-liquid interface is observed. The interfacial turbulence phenomena is induced by evaporation of the organic solvent along the gas-liquid interface while  $N_2$  gas purges the gas-liquid interface, or induced by adding surfactant additives on the liquid interface. Meanwhile, in order to investigate the enhancement of the interface turbulence on the mass transfer, by means of adding ethanol on the water interface during the  $CO_2$  absorption into water, the numerical simulation of the induced Marangoni convection is conducted to analyze its detailed flowing information.

The convection structure of interfacial turbulence has been observed to be roller-shaped, polygon and honeycomb-shaped. The flowing patterns of both Marangoni convection and Rayleigh convection are observed by means of the laser shadowgraph technique with seven different binary systems, which are ether-n-heptane, acetone-isobutyl alcohol, ethanol-water, isopropyl alcohol-water,

acetone-water, ether-toluene, and acetone-n-heptane. The observed interfacial convection structures include the plume convection along the vertical direction, cells convection and vortex flow, etc. which are different with the interfacial convection parallel to the interface reported. A series of fluid flow phenomena occurred on the liquid interface or in the liquid body are observed, with different surfactant additives, such as propionic acid, ethanol, acetic acid, isopropyl alcohol and acetone. Meanwhile, in order to investigate the enhancement of the interface turbulence on the mass transfer, the experiment is conducted by means of the CO<sub>2</sub> absorption into water with adding ethanol on the water surface.

**Key words:** interfacial phenomenon; interface turbulence; mass transfer; numerical simulation.

## 目 录

前 言 .....	1
第一章 文献综述 .....	2
1.1 界面湍动现象介绍 .....	2
1.1.1 界面湍动现象产生的原因 .....	2
1.1.2 界面湍动现象的宏观表现形式 .....	3
1.2 界面湍动现象实验观测 .....	6
1.2.1 示踪法 .....	6
1.2.2 粒子成像测速法 .....	6
1.2.3 光学观测法 .....	7
1.2.3.1 激光全息干涉条纹法 .....	8
1.2.3.2 纹影法 .....	9
1.2.3.3 投影法 .....	11
1.3 界面湍动现象对传质过程的影响 .....	12
1.4 理论研究与应用 .....	14
1.4.1 界面湍动现象的理论研究 .....	14
1.4.2 界面湍动现象的实际应用 .....	15
1.5 本文的研究内容 .....	16
第二章 气液传质界面湍动现象的投影观察 .....	19
2.1 实验装置及方法 .....	19
2.1.1 激光投影法的构成原理 .....	19
2.1.2 实验试剂及性质 .....	21
2.1.3 实验设备及总装置 .....	22
2.2 实验现象及分析 .....	24
2.2.1 乙醚-正庚烷体系 .....	24
2.2.2 丙酮-异丁醇体系 .....	26
2.2.3 乙醇-水体系 .....	27
2.2.4 异丙醇-水体系 .....	29



2.2.5 丙酮-水体系 .....	32
2.2.6 乙醚-甲苯体系 .....	34
2.2.7 丙酮-正庚烷体系 .....	36
<b>2.3 讨论与结论 .....</b>	<b>39</b>
<b>第三章 人为诱导的界面湍动现象观察 .....</b>	<b>42</b>
<b>3.1 实验部分 .....</b>	<b>42</b>
3.1.1 实验试剂及性质 .....	42
3.1.2 实验设备及光路 .....	43
<b>3.2 单注射的实验现象及分析 .....</b>	<b>45</b>
3.2.1 丙酸 .....	45
3.2.2 乙酸 .....	47
3.2.3 乙醇 .....	48
3.2.4 异丙醇 .....	50
3.2.5 丙酮 .....	51
<b>3.3 双注射的实验现象和分析 .....</b>	<b>53</b>
3.3.1 乙醇添加到水界面时的传质现象 .....	53
3.3.2 乙酸添加到水界面时的传质现象 .....	55
3.3.3 水添加到乙醇界面时的传质现象 .....	55
<b>3.4 讨论 .....</b>	<b>56</b>
<b>3.5 结论 .....</b>	<b>57</b>
<b>第四章 Marangoni 对流数值模拟及相关实验 .....</b>	<b>60</b>
<b>4.1 引言 .....</b>	<b>60</b>
<b>4.2 模型机理及建立 .....</b>	<b>60</b>
<b>4.3 数值求解结果及讨论 .....</b>	<b>62</b>
<b>4.4 相关实验 .....</b>	<b>65</b>
4.4.1 界面现象的观察 .....	66
4.4.2 界面速度场 .....	66
4.4.3 添加乙醇时的吸收通量 .....	67
<b>4.5 讨论与结论 .....</b>	<b>69</b>
<b>第五章 结论 .....</b>	<b>71</b>

参 考 文 献 .....	73
攻读硕士期间发表的论文 .....	81
致 谢 .....	82

厦门大学博硕士论文摘要库

## Table of Contents

<b>Introduction</b>	1
<b>Chapter 1 Literatures Review</b>	2
<b>1.1 The Introduction</b>	2
1.1.1 The Causes of Interfacial Turbulence	2
1.1.2 Macroscopical Expression of Interfacial Turbulence	3
<b>1.2 The Experimental Observations</b>	6
1.2.1 Tracer Imaging Measurement Method	6
1.2.2 Particle Image Velocimetry (PIV) Method	6
1.2.3 Optical Measurements	7
1.2.3.1 Laser Holographic Interference Fringes Method	8
1.2.3.2 Schlieren Method	9
1.2.3.3 Shadowgraph Method	11
<b>1.3 The Effect of Interfacial Turbulence Phenomena to the Process of Mass Transfer</b>	12
<b>1.4 Theoretical Study and Application</b>	14
1.4.1 Theoretical Study of Interfacial Turbulence Phenomena	14
1.4.2 The Application of Interfacial Turbulence Phenomena	15
<b>1.5 The Content of this Study</b>	16
<b>Chapter 2 Shadowgraph Observation on Interfacial Turbulence Phenomena in Gas-liquid Mass Transfer process</b>	19
<b>2.1 Experimental Device and Method</b>	19
2.1.1 The Structure Principle of Laser-shadowgraph Method	19
2.1.2 Experimentai Reagent and Properties	21
2.1.3 Experimental Device	22
<b>2.2 Experiment Phenomena and Analysis</b>	24
2.2.1 Ethyl ether-N-heptane System	24
2.2.2 Acetone-Isobutyl alcohol System	26
2.2.3 Ethanol-Water System	27

2.2.4 Isopropyl alcohol-Water System .....	29
2.2.5 Acetone-Water System .....	32
2.2.6 Ethyl ether-Toluene System .....	34
2.2.7 Acetone-N-heptane System .....	36
<b>2.3 Discussion and Conclusion .....</b>	<b>39</b>
 <b>Chapter 3 The Observation of the Artificial Interfacial Turbulence</b>	
<b>Phenomenon .....</b>	<b>42</b>
<b>3.1 Experiment Part .....</b>	<b>42</b>
3.1.1 Experimentai Reagent and Properties .....	42
3.1.2 Experimental Device .....	43
<b>3.2 Experimental Phenomena and Analysis of Single Injection .....</b>	<b>45</b>
3.2.1 Propionic acid .....	45
3.2.2 Acetic acid .....	47
3.2.3 Ethanol .....	48
3.2.4 Isopropyl alcohol .....	50
3.2.5 Acetone .....	51
<b>3.3 Experimental Phenomena and Analysis of Double Injection .....</b>	<b>53</b>
3.3.1 Interfacial Turbulence Phenomena Below the Water Interface while Adding Ethanol .....	53
3.3.2 Interfacial Turbulence Phenomena Below the Water Interface while Adding Acetic acid .....	55
3.3.3 Interfacial Turbulence Phenomena Below the Ethanol Interface while Adding Water .....	55
<b>3.4 Discussion .....</b>	<b>56</b>
<b>3.5 Conclusion .....</b>	<b>57</b>
 <b>Chapter 4 Numerical Simulation of the Marangoni Convection and Matched Experiment .....</b>	
<b>4.1 Introduction .....</b>	<b>60</b>
<b>4.2 The Mechanis m and Establishment of Model .....</b>	<b>60</b>
<b>4.3 The Results of Nume rical Solution and Discussion .....</b>	<b>62</b>
<b>4.4 Matched Experiment .....</b>	<b>65</b>
4.4.1 Observation of Interfacial Phenomena .....	66

4.4.2 Interface Velocity Field .....	66
4.4.3 Absorption Flux while Adding Ethanol .....	67
<b>4.5 Discussion and Conclusion .....</b>	<b>69</b>
<b>Chapter 5 Conclusion .....</b>	<b>71</b>
<b>References .....</b>	<b>73</b>
<b>Published Articles .....</b>	<b>81</b>
<b>Acknowledgements .....</b>	<b>82</b>

## 前 言

在质量传递和热量传递过程中,由于物质或热量在相界面上的传递导致临近相界面的流体表面张力和密度等性质发生变化,从而产生表面张力梯度和密度梯度,并由此引发的流体对流现象称之为界面湍动现象。由于界面易受外界干扰,难以观测,所以对复杂的界面现象至今还缺乏清晰的描述。

观察和研究传质过程中出现的界面湍动宏观对流结构具有十分重要的意义。首先,不同的对流结构对传质的影响不同,只有明确传质过程中界面湍动的对流结构,才能进一步说明界面湍动现象的产生机理及对传质过程的影响;其次,实际观测到的界面湍动对流结构可作为理论分析结果的直接判断依据,判断所采用的理论分析方法的可行性。

传质过程中界面湍动现象的出现可促进液体表面更新,增强了传质效果,因此对其的研究成果可应用于探讨增强传质过程的有效途径,开发高效、低能耗的传质设备,对探索微观传质机理和寻求强化传质途径具有理论和实际意义。

本文旨在对气液界面传质导致的界面湍动现象进行深入的实验研究和理论探讨:借助于激光投影法,针对界面湍动现象不同的引发机理——Marangoni 效应和 Rayleigh 效应,对双组份扩散传质过程中出现的界面湍动现象进行了系统观测;其次,通过在液面上添加不同的添加剂,对人为诱导的界面湍动现象进行了系统观测;最后采用数值模拟和实验相结合的方法对人为诱导 Marangoni 现象进行了较全面的考察。

## 第一章 文献综述

### 1.1 界面湍动现象介绍

#### 1.1.1 界面湍动现象产生的原因

混合物的分离、精馏、萃取以及气体的吸收、解吸等操作过程均涉及两相间的物质传递，由于两相间存在着界面，物质必须通过界面才能从一相转入到另一相中去，由于流体密度、表面张力等性质发生变化，临近界面一侧的液体可能会发生对流，从而导致传质系数发生变化，这种界面流动现象即为界面湍动<sup>[1]</sup>。界面湍动现象是一种流体力学不稳定现象，现象的产生与传质过程中的液相浓度和温度的变化密切相关。

传质过程中，产生界面湍动时的传质系数远远地大于只有分子扩散时的传质系数，有利于强化传质，因此吸引了众多学者的注意，促使人们寻找产生界面湍动现象的原因。目前，一般将促使界面湍动现象产生的原因归结为 Marangoni 效应和 Rayleigh 效应<sup>[2]</sup>。其中由于表面张力梯度发生变化引起的界面湍动现象称为 Marangoni 效应或对流，由于密度差异引起的界面湍动现象称为 Rayleigh 效应或对流。两者可分别用无因次数  $Ma$  数和  $Ra$  数来表征，其中：

$$Ma = \frac{d\Delta\sigma}{D\mu}, \quad Ra = \frac{d^3 g \Delta\rho}{D\mu}$$

传质过程中，液相界面的物化性质发生改变，如果  $\Delta\sigma > 0$ 、 $Ma > 0$ ，并且  $Ma$  超过一定的临界值  $Ma_c$  时，表面张力梯度将引发 Marangoni 对流现象；同样当  $\Delta\rho > 0$ 、 $Ra > 0$ ，并且  $Ra$  超过一定的临界值  $Ra_c$  时，在密度梯度的驱动下，溶液中将引发 Rayleigh 对流现象，这两种对流都可能导致宏观可测的流体流动。实际上，观察到的界面湍动现象往往是这两种效应耦合作用的结果。

由于 Rayleigh 对流现象是由于密度梯度产生的，若是可以克服重力的影响，就能考察没有 Rayleigh 效应伴随的界面湍动现象。Straub<sup>[3]</sup>在微重力环境下，对界面上的无 Rayleigh 对流伴随下的 Marangoni 对流现象进行了详细的阐述。Dijkstra 等<sup>[4]</sup>研究了无重力条件下二维正方形容器中的流体 Marangoni 对流不稳

定性，发现了一些从单细胞到四细胞的细胞状区域。

### 1.1.2 界面湍动现象的宏观表现形式

观察和研究在传质过程中出现的界面湍动宏观对流结构具有十分重要的意义，不同的对流形式对传质的影响程度不一样，因此，研究界面湍动的对流结构，可进一步说明界面湍动现象的发生机理及对传质过程的影响<sup>[5]</sup>。传质过程中，界面湍动现象的宏观表现形态通常可分为有序对流和无序对流，流体在静止或者层流的情况下，界面湍动现象通常表现为有序对流结构，有多种表现形式，具体包括细胞状、滚筒状、界面波形和多边形等规则的流体对流结构，并且有着统一的几何尺寸、相似的特性。但是实际传质过程中，如果主体湍动强烈，主体流动的干扰使界面上难以形成有序的界面湍动现象，而且难以观测。

早在1855年，汤普森就发现在葡萄酒和其他的一些酒精饮料表面可观察到Marangoni对流现象<sup>[6]</sup>。近一个世纪以来，人们通过应用各种方法以及蒸发、吸收、解吸和萃取等不同的传质手段，对界面湍动现象进行了一系列的观察，分别获取了细胞型、六边形、滚筒状等规则以及其它不规则的复杂结构形态，丰富了对界面湍动现象的直观认识，并为理论研究提供了实验依据<sup>[7-14]</sup>。例如，Lewis<sup>[15]</sup>和Lewis、Pratt<sup>[16]</sup>在使用悬滴法测量相际界面张力时注意到波纹、不稳定的脉动及悬滴表面运动等现象，观察并研究了异常高的传质速率和明显的界面湍动。

从底部均匀加热带有自由面的水平液体体系，当上下温差达到某一临界值后，在液体中会产生对流涡胞，这类现象引起了广大学者的注意<sup>[17-21]</sup>。1900年，Bénard<sup>[17]</sup>通过在静止的液体薄层下方均匀加热，发现溶液表面产生了具有规则性的六边形蜂窝状对流结构，在表面张力梯度的驱使下布满整个液面，如图 1.1 所示。



Degree papers are in the "[Xiamen University Electronic Theses and Dissertations Database](#)". Full texts are available in the following ways:

1. If your library is a CALIS member libraries, please log on <http://etd.calis.edu.cn/> and submit requests online, or consult the interlibrary loan department in your library.
2. For users of non-CALIS member libraries, please mail to [etd@xmu.edu.cn](mailto:etd@xmu.edu.cn) for delivery details.

厦门大学博硕士论文摘要库